

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **08208899 A**

(43) Date of publication of application: **13.08.96**

(51) Int. Cl

**C08L 23/08**

**C08K 5/20**

**C09J123/08**

**// C08J 5/12**

(21) Application number: **07021544**

(22) Date of filing: **09.02.95**

(71) Applicant: **SUMITOMO CHEM CO LTD**

(72) Inventor: **YAMAGUCHI NOBORU  
FUJITA HARUNORI**

**(54) ADHESIVE RESIN COMPOSITION**

**(57) Abstract:**

**PURPOSE:** To obtain an adhesive resin composition excellent in adhesion to polar materials and capable of giving films with good surface slipperiness, comprising a carboxylic acid anhydride group-bearing ethylene-based resin and a carboxylic acid amide-based lubricant containing secondary amide but free from primary amide.

**CONSTITUTION:** The adhesive resin composition excellent in adhesion to polar materials such as metals, glass and polar polymeric materials and capable of

giving films with good surface slipperiness is obtained by incorporating (A) 100 pts.wt. of a carboxylic acid anhydride group-bearing ethylene-based resin consisting of e.g. an ethylene-maleic anhydride- $\alpha,\beta$ -unsaturated carboxylic alkyl ester copolymer with (B) 0.01-1 pt.wt. of a carboxylic acid amide-based lubricant containing secondary amide but free from primary amide, consisting of e.g. ethylenebisoleic acid amide, methylenebisoleic acid amide, N-stearyloleic acid amide, N-stearylcerucic acid amide or N-stearylbehenic acid amide.

**COPYRIGHT:** (C)1996,JPO

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-208899

(43)公開日 平成8年(1996)8月13日

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>  
C 0 8 L 23/08  
C 0 8 K 5/20  
C 0 9 J 123/08  
// C 0 8 J 5/12

識別記号 K E W  
内整理番号

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数5 OL (全4頁)

(21)出願番号 特願平7-21544

(22)出願日 平成7年(1995)2月9日

(71)出願人 000002093

住友化学工業株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

(72)発明者 山口 登

千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内

(72)発明者 藤田 晴教

千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内

(74)代理人 弁理士 久保山 隆 (外1名)

(54)【発明の名称】接着性樹脂組成物

(57)【要約】

【構成】 下記(A)成分100重量部及び(B)成分0.01~1重量部を含有する接着性樹脂組成物。

(A)成分:カルボン酸無水物基を含有するエチレン系樹脂

(B)成分:第二アミドを含有し、かつ第一アミドを含有しないカルボン酸アミド系滑剤

【効果】 金属、ガラス、有極性高分子材料などの極性材料との接着性に優れ、かつフィルムに加工した場合の該フィルム表面の滑り性に優れた接着性樹脂組成物を提供することができる。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記(A)成分100重量部及び(B)成分0.01~1重量部を含有する接着性樹脂組成物。

(A) 成分:カルボン酸無水物基を含有するエチレン系樹脂

(B) 成分:第二アミドを含有し、かつ第一アミドを含有しないカルボン酸アミド系滑剤

【請求項2】 (A)成分のカルボン酸無水物基が、無水マレイン酸基である請求項1記載の接着性樹脂組成物。

【請求項3】 (A)成分が、エチレン-無水マレイン酸- $\alpha$ ,  $\beta$ 不飽和カルボン酸アルキルエステル共重合体である請求項1記載の接着性樹脂組成物。

【請求項4】  $\alpha$ ,  $\beta$ 不飽和カルボン酸アルキルエステルが、アクリル酸エチルである請求項3記載の接着性樹脂組成物。

【請求項5】 (B)成分が、エチレンビスオレイン酸アミド、メチレンビスオレイン酸アミド、N-ステアリルオレイン酸アミド、N-ステアリルエルカ酸アミド又はN-ステアリルベヘニン酸アミドである請求項1記載の接着性樹脂組成物。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、接着性樹脂組成物に関するものである。更に詳しくは、本発明は、金属、ガラス、有極性高分子材料などの極性材料との接着性に優れ、かつフィルムに加工した場合の該フィルム表面の滑り性に優れた接着性樹脂組成物に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】ポリエチレン、ポリプロピレンなどに代表されるポリオレフィン系樹脂は、物理的性質、化学的性質、機械的性質及び成形加工性に優れ、かつ安価であるという特徴を有し、広く用いられている。ところが、ポリオレフィン系樹脂は、無極性であるため、金属、ガラス、有極性高分子材料などの極性材料との接着性に劣り、よってこれらとの複合化が困難であるという欠点を有している。この欠点を解消する方法として、ポリオレフィン系樹脂の構成成分として無水マレイン酸などを含有させて用いる方法が提案されている。しかしながら、この方法は、該ポリオレフィン系樹脂を極性材料との接着に供するに先立ってフィルムに加工した場合、該フィルムの表面は滑り性に乏しいため、加工工程において皺等の発生原因となり不都合であるという問題を有している。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】かかる状況の下、本発明が解決しようとする課題は、金属、ガラス、有極性高分子材料などの極性材料との接着性に優れ、かつフィルムに加工した場合の該フィルム表面の滑り性に優れた接着性樹脂組成物を提供する点に存するものである。

## 【0004】

【課題を解決するための手段】すなわち、本発明は、下記(A)成分100重量部及び(B)成分0.01~1重量部を含有する接着性樹脂組成物に係るものである。

(A) 成分:カルボン酸無水物基を含有するエチレン系樹脂

(B) 成分:第二アミドを含有し、かつ第一アミドを含有しないカルボン酸アミド系滑剤

## 【0005】以下、詳細に説明する。

10 【0006】本発明の(A)成分は、カルボン酸無水物基を含有するエチレン系樹脂である。

【0007】(A)成分中のカルボン酸無水物基としては、具体的には無水マレイン酸基、無水シトラコン酸基などをあげることができる。これらのうち、優れた接着性を得る観点から、無水マレイン酸基が好ましい。

【0008】無水マレイン酸基を含有するエチレン系樹脂としては、エチレン-無水マレイン酸鎖状共重合体及ポリエチレンなどに無水マレイン酸をグラフト重合体して得られるエチレン-無水マレイン酸分岐状重合体をあげることができが、導入可能な官能基当量の観点から、エチレン-無水マレイン酸鎖状共重合体が好ましい。該共重合体中における無水マレイン酸の含有量は、0.5~10重量%が好ましい。該含有量が過少であると接着力が不十分である場合があり、一方該含有量が過多であるとコスト的に不利になる場合がある。

【0009】優れた柔軟性を有するという観点から好ましい(A)成分として、エチレン-無水マレイン酸- $\alpha$ ,  $\beta$ 不飽和カルボン酸アルキルエステル共重合体をあげることができる。ここで、 $\alpha$ ,  $\beta$ 不飽和カルボン酸アルキルエステルとしては、炭素数3~8のものが好ましい。 $\alpha$ ,  $\beta$ 不飽和カルボン酸アルキルエステルの具体例としては、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸n-プロピル、アクリル酸イソプロピル、アクリル酸n-ブチル、アクリル酸t-ブチル、アクリル酸イソブチル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸n-プロピル、メタクリル酸イソプロピル、メタクリル酸n-ブチル、メタクリル酸t-ブチル、メタクリル酸イソブチルなどをあげることができ。これらのうちでも、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸n-ブチル、メタクリル酸メチルが好ましい。

40 【0010】エチレン-無水マレイン酸- $\alpha$ ,  $\beta$ 不飽和カルボン酸アルキルエステル共重合体中のエチレン含有量は、50~90重量%が好ましく、更に好ましくは60~85重量%である。該含有量が過少であると耐熱性に劣る場合があり、一方該含有量が過多であると柔軟性が乏しくなる場合がある。

【0011】エチレン-無水マレイン酸- $\alpha$ ,  $\beta$ 不飽和カルボン酸アルキルエステル共重合体中の無水マレイン酸含有量は、0.5~10重量%が好ましく、更に好ま

しくは1～5重量%である。該含有量が過少であると接着力が不十分である場合があり、一方該含有量が過多であるとコスト的に不利になる場合がある。

【0012】エチレン-無水マレイン酸- $\alpha$ 、 $\beta$ 不飽和カルボン酸アルキルエステル共重合体中の $\alpha$ 、 $\beta$ 不飽和カルボン酸アルキルエステル含有量は、1～49重量%が好ましく、更に好ましくは2～30重量%である。該含有量が過少であると柔軟性が乏しくなる場合があり、一方該含有量が過多であると耐熱性に劣る場合がある。

【0013】本発明の(A)成分は、190℃における溶融指数が0.5～200g/10分であることが好ましい。該溶融指数が過小又は過大であると加工性に劣る場合がある。

【0014】本発明の(B)成分は、第二アミドを含有し、かつ第一アミドを含有しないカルボン酸アミド系滑剤である。

【0015】(B)成分として、具体的には、ビスマイド系滑剤及びN-アルキルアミド系滑剤をあげることができる。このうち、ビスマイド系滑剤が好ましい。

【0016】ビスマイド系滑剤としては、エチレンビスマオレイン酸アミド、メチレンビスマオレイン酸アミドなどを例示することができる。

【0017】N-アルキルアミド系滑剤としては、N-ステアリルオレイン酸アミド、N-ステアリルエルカ酸アミド、N-ステアリルベヘニン酸アミドなどを例示することができる。

【0018】(B)成分は、前記のとおり、第一アミドを含有しないものである。第一アミドを含有する場合は滑性に劣る。

【0019】本発明の接着性樹脂組成物における(A)成分と(B)成分の含有量は、(A)成分100重量部あたり(B)成分0.01～1重量部、好ましくは0.05～0.5重量部である。(B)成分が過少であると滑性に劣り、一方(B)成分が過多であると接着力に劣る。

【0020】本発明の接着性樹脂組成物は、本発明の効果を阻害しない範囲において、本発明の必須成分である(A)成分及び(B)成分に加えて、本発明以外エチレン系樹脂、熱安定剤などの添加剤を含有してもよい。

【0021】本発明の接着性樹脂組成物を得る方法としては、特に制限はなく、たとえば、(A)成分及び(B)成分を押出機などを用いて混練すればよい。また、(B)成分を、たとえばエチレン-メタクリル酸メチル共重合体と溶融混練することにより滑剤マスター-バッチを製造し、該滑剤マスター-バッチと(A)成分とを、たとえば押出機を用いて、均一に混合してもよい。

【0022】本発明の接着性樹脂組成物は、金属、ガラス、有極性高分子材料などの極性材料との接着性に優れるものであり、その特徴を利用して、ポリオレフィン系樹脂と極性材料からなる積層体を得ることができる。た

とえば、本発明の接着性樹脂組成物を、Tダイ加工機などを用いてフィルムに加工する。次に、極性材料の上に該フィルムを載せ、更に該フィルムの上にポリオレフィン系樹脂を載せ、加熱圧着する。かくして、該フィルムを介したポリオレフィン系樹脂と極性材料からなる積層体が得られる。

【0023】上記の極性材料としては、アルミニウム、鉄、銅、鉛、ステンレスなどの金属；エチレン-ビニルアルコール共重合体、ポリアミド、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレートなどの有極性高分子材料；ガラスなどをあげることができる。

【0024】本発明の接着性樹脂組成物を用い、公知の加工技術を適用することにより、優れた接着性を有する被覆体、積層体、強化樹脂など、各種の複合材料を製造することができる。たとえば積層体においては、流動浸漬法、静電塗装法、溶射法などの粉体塗装法、溶液塗装法、押出コーティング法、共押出法、ドライラミネート法、加熱圧着法、インサート成形法、さらにはこれらの組合せなどがその目的に応じて適用される。また、押出成形法や、射出成形法などにより、充填材強化樹脂や繊維強化樹脂などを製造することもできる。

【0025】

#### 【実施例】

##### 実施例1

エチレン-メタクリル酸メチル共重合体 [(エチレン/メタクリル酸メチル)重量比=90/10; 190℃×荷重2.16kgにおけるMFR=7g/10分] 100重量部及び(B)成分としてのエチレンビスマオレイン酸アミド1重量部を、ラボプラストミルで溶融混練し、滑剤マスター-バッチを作製した。

【0026】次に、(A)成分としてのエチレン-アクリル酸エチル-無水マレイン酸共重合体 [(エチレン/アクリル酸エチル/無水マレイン酸)重量比=91/6/3; 190℃×荷重2.16kgにおけるMFR=5g/10分] 100重量部及び前記の滑剤マスター-バッチ10重量部をブレンドし、30mmφフィルム加工機を用いて、50μのフィルムに加工した。該フィルムについて、後記の方法により滑り性を評価した。評価結果を表1に示した。

【0027】更に、上記のフィルムをポリエチレンフィルム(厚さ50μ)とアルミニウム板又はポリアミドフィルム(厚さ100μ)の間に挟み、ヒートシーラー(ポリエチレン側片面加熱、120℃×3kg/cm<sup>2</sup>×3秒)により加熱圧着させることにより積層体を得た。該積層体について、後記の方法により、接着強度を評価した。

#### 【0028】(1) 滑り性の評価方法

摩擦測定器を用い、試料を傾斜板、スレッド(1kg)の両方に取付け、傾斜板を傾斜速度2.7°/秒の速度で上昇させた。このときスレッドが滑る角度θを測定し

静止摩擦係数  $\mu = \tan \theta$  より  $\mu$  を求めた。

【0029】(2) 接着強度の評価方法

接着後のフィルムをMD方向に10mm巾に切断し、試験片の接着部分の一端をあらかじめ剥離させ、両方を引っ張り試験機のチャックに取付けた。この試験片の剥離の両端を引っ張り試験機で100mm/分の速度で引っ張り、180°剥離を行ったときの強度を求めた。\*

\*【0030】比較例1~4

表1の組成を有する接着性樹脂組成物を用いたこと以外は、実施例1と同様に行った。評価結果を表1に示した。

【0031】

【表1】

実施例	比 較 例				
	1	1	2	3	4
<b>組成 *1</b>					
(A) 成分					
種類 *2	A-1	A-1	A-1	A-1	A-1
量 wt	100	100	100	100	100
(B) 成分					
種類 *3	B-1	-	-	B-2	B-3
量 wt	0.1	0	0	0.1	0.1
他成分					
種類 *4	Z-1	-	Z-1	Z-1	Z-1
量 wt	10	0	10	10	10
MFR *5	5.1	4.8	5.0	5.1	5.0
評価結果					
接着強度 g/10mm					
AI *6	460	330	460	410	500
PA *7	300	210	250	250	275
滑り性 $\mu$	0.34	>1.73	>1.73	>1.73	>1.73

【0032】\*1 組成：接着性樹脂組成物の組成

\*2 (A) 成分の種類

A-1：エチレンーアクリル酸エチルー無水マレイン酸共重合体〔(エチレン/アクリル酸エチル/無水マレイン酸)重量比=91/6/3; 190°C×荷重2.16kgにおけるMFR=5g/10分〕

なお、無水マレイン酸の含有量は、次の方法により測定した。すなわち、試料の少量を加熱キシレンに溶解させ、無水アセトンで沈澱させることにより精製した後、再度キシレン溶液とし、フェノールフタレインを指示薬に用いて加温下(110から120°C)に、NaOHメタノール溶液により滴定して求めた。

【0033】\*3 (B) 成分の種類

B-1：エチレンビスオレイン酸アミド(本発明によるもの)

B-2：オレイン酸アミド(本発明によらないもの)

B-3：エルカ酸アミド(本発明によらないもの)

【0034】\*4 他成分の種類

Z-1：エチレンーメタクリル酸メチル共重合体〔(エチレン/メタクリル酸メチル)重量比=90/10; 190°C×荷重2.16kgにおけるMFR=7g/10分〕；滑剤マスター・バッチのベースとして使用した  
\*5 MFR：接着性樹脂組成物の(190°C×荷重2.16kgにおける)MFR(メルトフローレート)；JIS K6760に準拠して測定した。

\*6 AI：アルミニウム

\*7 PA：ポリアミドフィルム

【0035】

【発明の効果】以上説明したとおり、本発明により、金属、ガラス、有極性高分子材料などの極性材料との接着性に優れ、かつフィルムに加工した場合の該フィルム表面の滑り性に優れた接着性樹脂組成物を提供することができた。